

**ORIENTED FILM AND FILM FOR PROTECTING POLARIZER USING THE SAME**

**Publication number:** JP2002146051 (A)  
**Publication date:** 2002-05-22  
**Inventor(s):** SHIODA MINORU; HIKITA TOSHIHIKO; FUJII SADA O  
**Applicant(s):** KANEGAFUCHI CHEMICAL IND  
**Classification:**  
**- international:** *G02B5/30; B29C55/04; C08J5/18; C08L23/02; C08L25/00; C08L35/00; C08L101/02; G02B5/30; B29C55/04; C08J5/18; C08L23/00; C08L25/00; C08L35/00; C08L101/00; (IPC1-7): C08J5/18; B29C55/04; C08L23/02; C08L25/00; C08L35/00; C08L101/02; G02B5/30; B29K101/12; B29L7/00*  
**- European:**  
**Application number:** JP20000345967 20001113  
**Priority number(s):** JP20000345967 20001113

**Abstract of JP 2002146051 (A)**  
**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain transparent, oriented film that has excellent handleability only via the longitudinal roller stretching without using an expensive tenter-type transverse film stretching machine or a simultaneous biaxial film stretching machine. **SOLUTION:** A film including (A) a thermoplastic resin comprising a component bearing substituted or unsubstituted imide groups on the side chains and (B) a thermoplastic resin bearing at least substituted or unsubstituted phenyl group and nitrile group is mono-axially roll-stretched in the longitudinal direction at the neck-in rate (%) of  $\epsilon = (1 - 1/(\text{orientation ratio})) \times 100$  in % whereby an excellent oriented film is obtained.

Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide

(The English Partial translation of Japanese Laid-open Patent Publication No. 2002-146051)

(11)Japanese Laid-open Patent Publication No. 2002-146051

(43)Laid-open publication date: May 22, 2002

(21)Japanese patent application No. 2000-345967

(22)Filing date: November 13, 2000

(54)Title of the Invention

STRETCHED FILM AND FILM FOR PROTECTING POLARIZER  
USING THE SAME

(72)Inventor: Minoru SHIODA, et al.

(71)Applicant: Kaneka Corporation

[Claims]

[Claim 1] A film that is a monoaxially stretched film and is formed from a resin composition containing (A) a thermoplastic resin having a substituted or non-substituted imide group on a side chain and (B) a thermoplastic resin having a substituted or non-substituted phenyl group and a nitrile group on a side chain, the film having a neck-in ratio of  $(1 - 1/\text{cube root of stretch ratio}) \times 100$  or less.

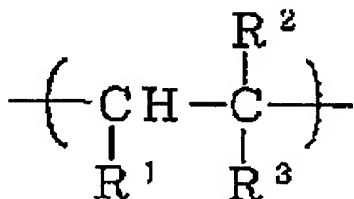
[Claim 2] The film of claim 1, wherein said thermoplastic resin (A) has a recurring unit of the formula (1) and a recurring unit of the formula (2), the content of the recurring unit of the formula (1) being 30 to 80 mol% based on the total of recurring units of said thermoplastic resin (A), the content of the recurring unit of the formula (2) being 70 to 20 mol% based on the total of recurring units of said thermoplastic resin (A),

said thermoplastic resin (B) has a recurring unit of the formula (3) and a recurring unit of the formula (4), the content of the recurring unit of the formula (3) being 20 to 50 % by weight, the content of the recurring unit of the formula (4) being 50 to 80 % by weight, both being based on the total of recurring units in said thermoplastic resin (B),

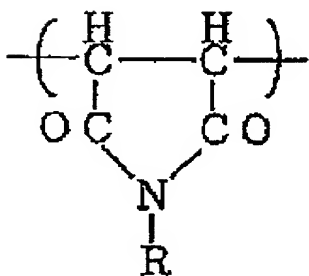
and, based on the total of amounts of said thermoplastic resin (A) and said thermoplastic resin (B), the content of said thermoplastic resin (A) is 60 to 80 %

by weight, and the content of said thermoplastic resin (B) is 20 to 40 % by weight.

[Formula 1]



formula (1)

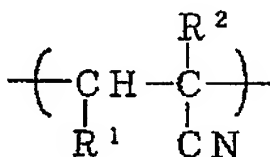


formula (2)

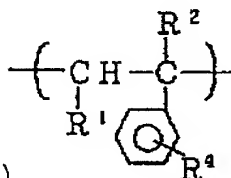
(In the formula (1), each of R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> and R<sup>3</sup> is independently hydrogen or an alkyl group having 1 to 8 carbon atoms.)

(In the formula (2), R is hydrogen, an alkyl group having 1 to 18 carbon atoms or a cycloalkyl group having 3 to 12 carbon atoms.)

[Formula 2]



formula (3)



formula (4)

(In the formula (3), each of R<sup>1</sup> and R<sup>2</sup> is independently hydrogen or an alkyl group having 1 to 8 carbon atoms.)

(In the formula (4), each of R<sup>1</sup> and R<sup>2</sup> is independently hydrogen or an alkyl group having 1 to 8 carbon atoms, and R<sup>4</sup> is hydrogen, an alkyl group having 1 to 8 carbon atoms, a halogen, a hydroxyl group, an alkoxy group or a nitro group.)

[Claim 3] A polarizer protective film formed of the stretched film recited in claim 1 or 2.

[Claim 4] A method for producing a stretched film, which comprises the step of monoaxially roll-stretching in the machine direction a starting film formed from a resin composition containing (A) a thermoplastic resin having a substituted or non-substituted imide group on a side chain and (B) a thermoplastic resin having a substituted or non-substituted phenyl group and a nitrile group on a side chain,

the thus-obtained stretched film having a neck-in ratio of  $(1 - 1/\text{cube root of stretch ratio}) \times 100$  or less.

[Claim 5] A method for producing a stretched film, which comprises the step of monoaxially roll-stretching in the machine direction a starting film formed from a resin composition containing (A) a thermoplastic resin having a substituted or non-substituted imide group on a side chain and (B) a thermoplastic resin having a substituted or non-substituted phenyl group and a nitrile group on a side chain,

wherein an inter-roll distance when said monoaxial roll-stretching in the machine direction is practiced is 10 mm to 150 mm.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2002-146051  
(P2002-146051A)

(43) 公開日 平成14年5月22日(2002.5.22)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード(参考)
C 0 8 J 5/18	C E S	C 0 8 J 5/18	C E S 2 H 0 4 9
B 2 9 C 55/04		B 2 9 C 55/04	4 F 0 7 1
C 0 8 L 23/02		C 0 8 L 23/02	4 F 2 1 0
25/00		25/00	4 J 0 0 2
35/00		35/00	
審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 15 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-345967(P2000-345967)

(22) 出願日 平成12年11月13日(2000.11.13)

(71) 出願人 000000941

鐘淵化学工業株式会社

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

(72) 発明者 潮田 実

兵庫県尼崎市武庫之荘5-2-10

(72) 発明者 疋田 敏彦

大阪府摂津市烏飼西5-1-1

(72) 発明者 藤井 貞男

兵庫県神戸市北区筑紫が丘8-4-9

(74) 代理人 100078282

弁理士 山本 秀策

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 延伸フィルム及びそれを用いた偏光子保護フィルム

(57) 【要約】

【課題】 高価なテンター横延伸機や同時二軸延伸機を使うことなくロール縦延伸のみでハンドリング性に優れた透明延伸フィルムを得ること。

【解決手段】 (A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する成分からなる熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に少なくとも置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有するフィルムを、ネックイン率 (%) が  $(1 - 1/\text{延伸倍率の3乗根}) \times 100$  以下で、ロール縦一軸延伸することにより優れた延伸フィルムが得られる。

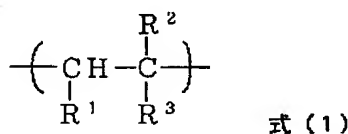
## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】 一軸延伸フィルムであって、

(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなり、

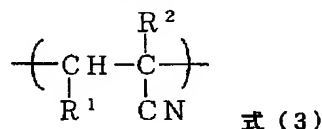
ネックイン率 (%) が  $(1 - 1/\text{延伸倍率の3乗根}) \times 100$  以下である、フィルム。

【請求項2】 請求項1に記載のフィルムであって、前記熱可塑性樹脂 (A) が、式 (1) で表される繰返し単位および式 (2) で表される繰返し単位を有し、ここで式 (1) の繰返し単位の含有率が該熱可塑性樹脂 (A) の総繰返し単位を基準として30～80モル%であり、式 (2) の繰返し単位の含有率が該熱可塑\*



(式 (1) において、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  および  $\text{R}^3$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示す。)

(式 (2) において、 $\text{R}$  は、水素、炭素数1～18のア\*



(式 (3) において、 $\text{R}^1$  および  $\text{R}^2$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示す。)

(式 (4) において、 $\text{R}^1$  および  $\text{R}^2$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示し、 $\text{R}^4$  は、水素、炭素数1～8のアルキル基、ハロゲン基、水酸基、アルコキシ基、もしくはニトロ基を示す。)

【請求項3】 請求項1または請求項2に記載の延伸フィルムを用いてなる偏光子保護フィルム。

【請求項4】 延伸フィルムの製造方法であって、

(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなる原料フィルムをロール縦一軸延伸する工程を包含し、

ここで、得られる延伸フィルムのネックイン率 (%) が  $(1 - 1/\text{延伸倍率の3乗根}) \times 100$  以下である、方法。

【請求項5】 延伸フィルムの製造方法であって、

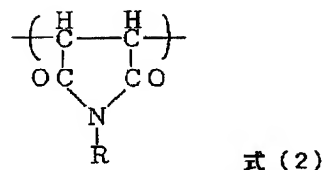
(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂

\* 性樹脂 (A) の総繰返し単位を基準として70～20モル%であり、

前記熱可塑性樹脂 (B) が、式 (3) で表される繰返し単位および式 (4) で表される繰返し単位を有し、該熱可塑性樹脂 (B) 中の総繰返し単位を基準として、式 (3) の繰返し単位の含有率が20～50重量%であり、式 (4) の繰返し単位の含有率が50～80重量%であり、

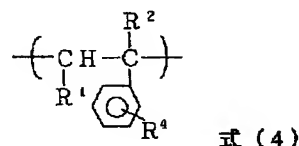
該熱可塑性樹脂 (A) の量と熱可塑性樹脂 (B) の量との合計を基準として、該熱可塑性樹脂 (A) の含有率が60～80重量%であり、かつ該熱可塑性樹脂 (B) の含有率が20～40重量%である、フィルム。

## 【化1】



※ルキル基、または炭素数3～12のシクロアルキル基を示す。)

## 【化2】



★組成物からなる原料フィルムをロール縦一軸延伸する工程を包含し、

ここで、該ロール縦一軸延伸を行う際のロール間距離が10mm～150mmである、方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、特定の熱可塑性樹脂からなる、ハンドリング性および光学的特性に優れた透明な一軸延伸フィルムおよびそれを用いた偏光子保護フィルムに関する。本発明はまた、ロール縦一軸延伸フィルムおよびそれを用いてなる偏光子保護フィルムに関する。

## 【0002】

【従来の技術】近年、ノート型パソコン、ワードプロセッサ、携帯電話、携帯情報端末等の小型化・薄型化・軽量化にともない、これらの電子機器に軽量・コンパクトという特長を生かした液晶表示装置が多く用いられてきている。液晶表示装置には、その表示品位を保つために偏光フィルム等の各種フィルムが用いられている。また、携帯情報端末や携帯電話向けに液晶表示装置を更に軽量化するため、ガラス基板の代わりにプラ

スチックフィルムを用いた液晶表示装置も実用化されている。

【0003】液晶表示装置のように偏光を取り扱う装置に用いるプラスチックフィルムには、光学的に透明である他に光学的な均質性が求められる。このため、高度に延伸したポリビニルアルコールからなる偏光子を保護するための偏光子保護フィルムや、ガラス基板を樹脂フィルムに代えたプラスチック液晶表示装置用のフィルム基板の場合、複屈折と厚みの積で表される位相差が小さいことが要求される。また、外部の応力などによりフィルム 10 の位相差が変化しにくいことが要求される。

【0004】液晶表示装置に用いられるプラスチックフィルムとして、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン等のエンジニアリングプラスチックや、トリアセチルセルロース等のセルロース類のプラスチックからなるフィルムが知られている。これらプラスチックフィルムを製造する場合、プラスチックの熔融流動、溶剤乾燥収縮、熱収縮や搬送応力等により成形中のフィルムには各種応力が発生する。このため、得られるフィルムにはこれらの応力により誘起される分子配向に起因する複屈折により位相差が残存する。そのため必要に応じ熱アニール等のフィルムに対する特別な処理を施し残存する位相差を低減させなければならず製造工程が煩雑になるなどの問題がある。また、残存する位相差を低減させたフィルムを用いた場合でも、そのあとのフィルムの加工時に生じる応力や変形により新たな位相差を生じる。更に、プラスチックフィルムが偏光子保護フィルムとして用いられる場合、偏光子の収縮応力により該フィルムに好ましくない位相差が生じ、偏光フィルムの偏光性能に悪影響を及ぼす事が知ら 20 れている。

【0005】これらの問題を解決するため、より分極の小さい、すなわち、分子の配向による位相差が発現しにくいプラスチックフィルムを得ることが試みられている。例えば、シクロオレフィン系フィルムや、マレイミド成分を有するオレフィン系フィルムが提案されている。

#### 【0006】

【発明が解決しようとする課題】上記シクロオレフィン系フィルムや、マレイミド成分を有するオレフィン系フィルム 40 の光弾性係数は比較的小さい。しかし、それでも配向複屈折のために視野角特性が悪く、大画面や広視野角用の液晶表示装置への使用が制限される。

【0007】一方、オレフィン-マレイミド系樹脂とスチレン-アクリロニトリル系樹脂とからなるフィルムは上記光弾性係数を更に小さくできるため、応力により誘起される分子配向による複屈折は比較的小さく、位相差も比較的小さいので好ましい材料として期待される。

【0008】しかし、これらの材料は、機械的特性が低く脆い。このために、フィルムの加工時のハンドリング 50

性に問題がある。例えば、フィルムが粘着ロールを通過する時やスリットする時、巻き取る時あるいは横延伸機のクリップに挟む時等のフィルムの製造時に、あるいは、他の材料とのラミネート等のフィルムの後加工時等に、裂けやすい、割れやすい等の現象が起こるという、実用上の問題を抱えている。

【0009】フィルムの機械特性を改善する方法として、可塑剤や可撓性を有する高分子などを添加する方法がある。しかし、これらの方法では一般に、ガラス転移温度が低下して耐熱性が損なわれやすい。あるいは、透明性などの光学的特性が損なわれやすいので好ましくない。

【0010】一方、特開平9-234786号には、フィルムを延伸加工することが提案されている。しかし、延伸により分子を強く配向させると配向複屈折が発生し、位相差が大きくなってしまふので好ましくない。

【0011】また、上記のプラスチックフィルムの機械的特性を改善するためには2軸延伸が必要である。しかしそのような2軸延伸を行うためには、高価な同時2軸延伸機や縦横の逐次延伸からなる逐次2軸延伸機が必要であり、製造コストが高くなるなどの問題があった。

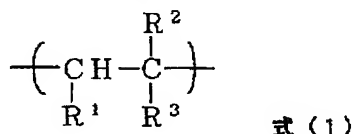
#### 【0012】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するため、本発明者等は鋭意研究を行った。その結果、比較的安価なロール縦一軸延伸機などを用いて、ネックイン率を制御しながら特定の組成を有する樹脂組成物からなるフィルムを一軸延伸することにより、上記課題が解決されることを見出し、本発明を完成した。すなわち、上記一軸延伸フィルムによれば、フィルムの伸び率や耐揉疲労、引裂伝播強度等の機械的強度が改善できること、フィルムの製造時や後加工時等のハンドリング性が大幅に改善され、フィルムが割れる、裂けるなどの問題の発生が大幅に減少すること、および複屈折がほとんど発生せず位相差が実質的に発生しないことを見出し、本発明に至った。

【0013】具体的には、本発明によれば、一軸延伸フィルムであって、(A)側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および(B)側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなり、ネックイン率(%)が $(1 - 1/\text{延伸倍率の3乗根}) \times 100$ 以下である、一軸延伸フィルムが提供される。

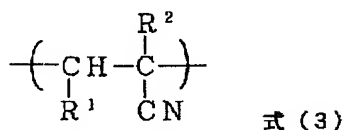
【0014】1つの実施態様では、上記延伸フィルムは、前記熱可塑性樹脂(A)が、式(1)で表される繰返し単位および式(2)で表される繰返し単位を有し、ここで式(1)の繰返し単位の含有率が該熱可塑性樹脂(A)の総繰返し単位を基準として30~80モル%であり、式(2)の繰返し単位の含有率が該熱可塑性樹脂(A)の総繰返し単位を基準として70~20モル%であり、前記熱可塑性樹脂(B)が、式

(3) で表される繰り返し単位および式 (4) で表される繰り返し単位を有し、該熱可塑性樹脂 (B) 中の繰り返し単位を基準として、式 (3) の繰り返し単位の含有率が 20~50 重量%であり、式 (4) の繰り返し単位の含有率が 50~80 重量%であり、該熱可塑性樹脂 (A) の量と熱可塑性樹脂 (B) の量との合計を基準と\*



【0016】(ここで、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  および  $\text{R}^3$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1~8 のアルキル基を示す。)

(ここで、 $\text{R}$  は、水素、炭素数 1~18 のアルキル基、※



【0018】(式 (3) において、 $\text{R}^1$  および  $\text{R}^2$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1~8 のアルキル基を示す。)

(式 (4) において、 $\text{R}^1$  および  $\text{R}^2$  は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1~8 のアルキル基を示し、式

(4) 中において  $\text{R}^4$  は、水素、炭素数 1~8 のアルキル基、ハロゲン基、水酸基、アルコキシ基、もしくはニトロ基を示す。)

別の局面において、本発明は、上記延伸フィルムを用いた偏光子保護フィルムを提供する。

【0019】さらに別の局面において、本発明は、延伸フィルムの製造方法を提供する。この方法は、(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなる原料フィルムをロール縦一軸延伸する工程を包含し、ここで、得られる延伸フィルムのネックイン率

(%) が  $(1 - 1/\text{延伸倍率の3乗根}) \times 100$  以下である。

【0020】またさらに別の局面において、本発明は、延伸フィルムの製造方法を提供する。この方法は、

(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなる原料フィルムをロール縦一軸延伸する工程を包含し、ここで、該ロール縦一軸延伸を行う際のロール間距離が 10 mm~150 mm である。

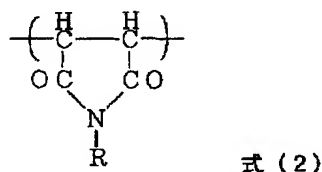
【0021】

【発明の実施の形態】(本発明のフィルム) まず、本発

\* して、該熱可塑性樹脂 (A) の含有率が 60~80 重量%であり、かつ該熱可塑性樹脂 (B) の含有率が 20~40 重量%である。

【0015】

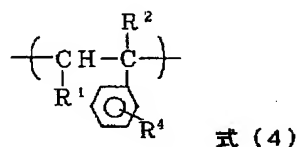
【化3】



※または炭素数 3~12 のシクロアルキル基を示す。)

【0017】

【化4】



明のフィルムについて説明する。

【0022】(樹脂組成物) 本発明の延伸フィルムは、(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物から作られる。本発明の延伸フィルムは、上記熱可塑性樹脂 (A) および熱可塑性樹脂 (B) のみから製造されることが好ましい。しかし、必要に応じて、上記熱可塑性樹脂 (A) および熱可塑性樹脂 (B) 以外に、第 3 の樹脂を用いてもよい。

【0023】なお、本明細書中においては、上記熱可塑性樹脂 (A) が共重合体樹脂である場合、この共重合体を、「熱可塑性共重合体 (A)」ともいう。また本明細書中においては、上記熱可塑性樹脂 (B) が共重合体である場合、この共重合体を、「熱可塑性共重合体 (B)」ともいう。

【0024】本発明に用いられる熱可塑性樹脂 (A) は、側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂である。ここで、熱可塑性樹脂 (A) の主鎖は、任意の熱可塑性樹脂の主鎖であり得る。例えば、炭素のみからなる主鎖であってもよく、または炭素以外の原子が炭素間に挿入される主鎖であってもよい。あるいは炭素以外の原子からなる主鎖であってもよい。好ましくは、炭素のみからなる主鎖である。例えば、炭化水素またはその置換体であり得る。具体的には例えば、主鎖は、付加重合により得られる主鎖であり得る。具体的には例えば、ポリオレフィンまたはポリビニルである。

【0025】また、主鎖は、縮合重合により得られる主鎖であってもよい。例えば、エステル結合、アミド結合

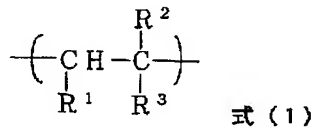


などで得られる主鎖であり得る。

【0026】好ましくは、主鎖は、置換ビニルモノマーを重合させて得られるポリビニル骨格である。

【0027】熱可塑性樹脂(A)に置換もしくは非置換のイミド基を導入する方法としては、従来公知の任意の方法が可能である。例えば、置換もしくは非置換のイミド基を有するモノマーを重合することにより、置換もしくは非置換のイミド基を有する熱可塑性樹脂を得てもよい。また例えば、各種モノマーを重合して主鎖を形成した後、側鎖に置換もしくは非置換のイミド基を導入して

【0028】イミド基が置換基で置換されている場合、\*



【0032】(式(1))において、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup> および R<sup>3</sup> は、それぞれ独立に、水素または炭素数1~8のアルキル基を示す。アルキル基の炭素数は、好ましくは1~4であり、より好ましくは、1~2であり、特に好ましくは1である。)

(式(2))において、Rは、水素、炭素数1~18のアルキル基、または炭素数3~12のシクロアルキル基を示す。アルキル基の炭素数は、好ましくは1~4であり、より好ましくは、1~2である。シクロアルキル基の炭素数は、好ましくは3~9であり、より好ましくは、4~7である。)

ここで、式(1)の繰返し単位の含有量は、好ましくは、該熱可塑性樹脂(A)の総繰返し単位を基準として、30~80モル%である。より好ましくは、40~60モル%であり、さらに好ましくは、45~55モル%である。式(2)の繰返し単位の含有量は、該熱可塑性樹脂(A)の総繰返し単位を基準として、70~20モル%である。より好ましくは、60~40モル%であり、さらに好ましくは、45~55モル%である。好ましい実施態様では、式(1)の繰返し単位と式

(2)の繰返し単位との和は100%である。しかし、必要に応じて、後述する第3の繰返し単位を用いてもよい。

【0033】第3の繰返し単位を用いる場合、第3の繰返し単位は、熱可塑性共重合体(A)の総繰返し単位を基準として、好ましくは30モル%以下であり、より好ましくは20モル%以下であり、さらに好ましくは15モル%以下であり、特に好ましくは10モル%以下である。第3の繰返し単位が多すぎる場合には、上記式(1)で表される繰返し単位と式(2)で表される繰返し単位との性能が充分に得られにくい。

※50

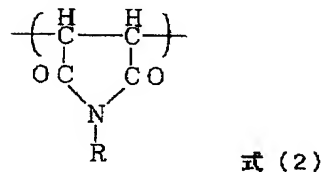
\* 当該置換基としては、イミド基の水素を置換し得る従来公知の置換基が使用可能である。具体的には例えば、アルキル基などである。

【0029】好ましくは、熱可塑性樹脂(A)は、少なくとも1種のオレフィン(アルケン)から誘導される繰返し単位と少なくとも1種の置換あるいは非置換マレイミド構造を有する繰返し単位とを含有する共重合体(二元もしくはそれ以上の多元共重合体)である。

【0030】特に好ましくは、熱可塑性樹脂(A)は、下記式(1)で表される繰返し単位と下記式(2)で表される繰返し単位とを含有する。

【0031】

【化5】



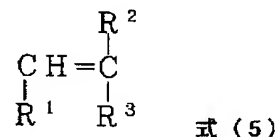
※【0034】また、第3の繰返し単位を用いる場合、第3の繰返し単位は、熱可塑性共重合体(A)の総繰返し単位を基準として、好ましくは1モル%以上であり、より好ましくは2モル%以上であり、さらに好ましくは3モル%以上であり、特に好ましくは5モル%以下である。第3の繰返し単位が少なすぎる場合には、組成物全体として、第3の繰返し単位による性能が充分に得られにくい。

【0035】なお、第3の繰返し単位を用いる場合においても、式(1)の繰返し単位と式(2)の繰返し単位との比率は、第3の繰返し単位が存在しない場合と同様の比率とすることが好ましい。

【0036】(式(1)の繰返し単位)式(1)の繰返し単位(オレフィン単位)を提供するオレフィンは、下記式(5)で表される。

【0037】

【化6】



【0038】(ここで、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup> および R<sup>3</sup> は、式(1)と同じである。)

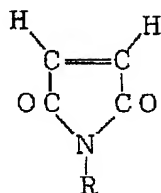
このようなオレフィンの好ましい例を挙げると、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、2-メチル-1-ヘブテン、1-イソオクテン、2-メチル-1-オクテン、2-エチル-1-ペンテン、2-エチル-2-ブテン、2-メチル-2-ペンテン、2-メチル-2-ヘキセン等である。これらオレフィンは、単独で用いてもよ

く、あるいは2種以上を組合せて用いてもよい。

【0039】(式(2)の繰り返し単位)上記式(2)の繰り返し単位(マレイミド単位)は、対応するマレイミド化合物から誘導することができる。そのようなマレイミド化合物は、下記式(6)：

【0040】

【化7】



式(6)

【0041】(ここで、Rは、式(2)に同じ。)で表される。そのようなマレイミド化合物の好ましい例を挙げると、マレイミド、並びにN-メチルマレイミド、N-エチルマレイミド、N-n-プロピルマレイミド、N-i-プロピルマレイミド、N-n-ブチルマレイミド、N-i-ブチルマレイミド、N-s-ブチルマレイミド、N-t-ブチルマレイミド、N-n-ペンチルマレイミド、N-n-ヘキシルマレイミド、N-n-ヘプチルマレイミド、N-n-オクチルマレイミド、N-ラウリルマレイミド、N-ステアリルマレイミド、N-シクロプロピルマレイミド、N-シクロブチルマレイミド、N-シクロペンチルマレイミド、N-シクロヘキシルマレイミド、N-シクロヘプチルマレイミド、N-シクロオクチルマレイミド等のN-置換マレイミドである。

【0042】これらのマレイミド化合物は、単独で用いてもよく、または2種以上を組み合わせ用いてもよい。マレイミド化合物としては、N-置換マレイミド(式(6)において、Rが水素以外の基)が特に好ましい。例えば、N-メチルマレイミドなどである。

【0043】(第3の繰り返し単位)本発明に用いる熱可塑性共重合体(A)は、上記オレフィン単位とマレイミド単位以外に、第3の繰り返し単位として、他の共重合性単量体を1種以上含有することができる。そのような共重合性単量体には、アクリル酸メチルやアクリル酸ブチルのようなアクリル酸エステル単量体、メタクリル酸メチルやメタクリル酸シクロヘキシルのようなメタクリル酸エステル単量体、酢酸ビニル等のビニルエステル単量体、メチルビニルエーテルのようなビニルエーテル単量体等のビニル単量体、並びに無水マレイン酸のような不飽和二重結合を有する酸無水物等が含まれる。これら第3の繰り返し単位は、1種類の単量体であってもよく、2種以上の単量体を組み合わせて第3の繰り返し単位としてもよい。第3の繰り返し単位を光学的特性を損なわない程度に含有させることにより、熱可塑性共重合体(A)の耐熱性を向上させたり、機械的強度を増大させたりすることができる。

【0044】(熱可塑性樹脂(A)の重合方法)熱可塑性樹脂(A)は、例えば、上記オレフィンとマレイミド化合物とを既知の重合方法で重合させることにより製造することができる。この重合には、グラフト重合も含まれる。あるいは、熱可塑性樹脂(A)は、上記オレフィンと無水マレイン酸とを常法に従って重合させて前駆重合体を製造し、これにアミン化合物を反応させて前駆重合体の無水マレイン酸部位をイミド化させることによって製造することができる。その場合に使用するアミン化合物としては、上記式(2)のマレイミド単位におけるイミド部位に対応するアミンが含まれる。より具体的には、式R-NH<sub>2</sub> (ただし、Rは、式(2)に同じ。)で表されるアミン化合物、例えばメチルアミン、エチルアミン、n-プロピルアミン、i-プロピルアミン、n-ブチルアミン、s-ブチルアミン、t-ブチルアミン、シクロヘキシルアミン等のアルキルアミンやアンモニアの他、ジメチル尿素、ジェチル尿素等を好ましく例示することができる。この場合にも、上記式(1)の繰り返し単位と式(2)の繰り返し単位を有する共重合体が得られる。

【0045】本発明に用いる熱可塑性共重合体(A)は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、グラフト共重合体、交互共重合体のいずれであってもよい。交互共重合体であることが好ましい。熱可塑性共重合体(A)は、より好ましくは、マレイミド単位として、式(2)におけるRがメチル基、エチル基、イソプロピル基およびシクロヘキシル基から選ばれたアルキル基である少なくとも1種のマレイミド単位を含有し、オレフィン単位として、式(1)におけるR<sup>1</sup>が水素であり、R<sup>2</sup>およびR<sup>3</sup>がそれぞれメチル基である少なくとも1種のオレフィン単位を含有する共重合体である。ここで、本明細書中でモノマーについて「単位」という場合には、当該モノマーが重合した後に残る残基のことをいう。具体的には、「マレイミド単位」とは、用いられた1つのマレイミド分子が重合した後に残る残基をいう。同様に「オレフィン単位」とは、用いられた1つのオレフィンモノマーが重合した後に残る残基をいう。

【0046】さらに好ましくは、熱可塑性共重合体(A)は、マレイミド単位としてN-メチルマレイミド単位を含有し、オレフィン単位としてイソブチレン単位を含有する。熱可塑性共重合体(A)は、N-置換マレイミドとイソブテンとの交互共重合体であることが特に好ましい。

【0047】本発明に用いる熱可塑性共重合体(A)において、マレイミド単位の含有率は、熱可塑性共重合体(A)の総繰り返し単位を基準として30モル%以上80モル%未満であることが好ましい。マレイミド単位の含有率が少なすぎるか、または多すぎる場合、得られるフィルムの耐熱性や機械的強度が損なわれるおそれがある。マレイミド単位の含有率は、より好ましくは、40

モル%以上60モル%以下である。

【0048】第3の繰返し単位を添加する場合には、第3の繰返し単位の含有率が、熱可塑性共重合体

(A)の総繰返し単位を基準として5モル%以上30モル%以下であることが好ましい。5モル%以上10モル%以下であることがより好ましい。

【0049】熱可塑性共重合体(A)中の繰返し単位の残りは、オレフィン単位である。熱可塑性共重合体

(A)は、マレイミド単位とオレフィン単位とを主成分として含むことが特に好ましい。1つの実施態様では、マレイミド単位とオレフィン単位との合計が、熱可塑性共重合体(A)中の50モル%以上であり、好ましくは、70モル%以上である。より好ましくは、80モル%以上であり、さらに好ましくは、90モル%以上である。

【0050】熱可塑性共重合体(A)は、 $1 \times 10^3$ 以上の重量平均分子量を有することが好ましい。より好ましくは、 $1 \times 10^4$ 以上である。

【0051】熱可塑性共重合体(A)は、 $1 \times 10^7$ 以下の重量平均分子量を有することが好ましい。より好ましくは、 $5 \times 10^5$ 以下である。

【0052】さらに、熱可塑性樹脂(A)は、ガラス転移温度が好ましくは80℃以上、より好ましくは100℃以上、さらに好ましくは130℃以上であるような耐熱性を示すことが好ましい。

【0053】本発明に用いられるオレフィン-マレイミド共重合体は、既述のようにそれ自体既知の方法で製造することができる。例えば特開平5-59193号公報、特開平5-195801号公報、特開平6-136058号公報および特開平9-328523号公報に記載されている方法で得ることができる。具体的には例えば、オレフィンとマレイミド化合物とを直接共重合させたり、その一方の重合体に他方をグラフト共重合したり、あるいは前述した前駆重合体に対してアミン化合物を反応させてイミド結合を導入することによって製造することができる。

【0054】(熱可塑性樹脂(B))本発明に用いられる熱可塑性樹脂(B)は、置換または非置換フェニル基とニトリル基とを側鎖に有する熱可塑性樹脂である。ここで、熱可塑性樹脂(B)の主鎖は、任意の熱可塑性樹脂の主鎖であり得る。例えば、炭素のみからなる主鎖であってもよく、または炭素以外の原子が炭素間に挿入される主鎖であってもよい。あるいは炭素以外の原子からなる主鎖であってもよい。好ましくは、炭素のみからなる主鎖である。例えば、炭化水素またはその置換体であり得る。具体的には例えば、主鎖は、付加重合により得られる主鎖であり得る。具体的には例えば、ポリオレフィンまたはポリビニルである。

【0055】また、主鎖は、縮重合により得られる主鎖であってもよい。例えば、エステル結合、アミド結合

などで得られる主鎖であり得る。

【0056】好ましくは、主鎖は、置換ビニルモノマーを重合させて得られるポリビニル骨格である。

【0057】熱可塑性樹脂(B)に置換または非置換フェニル基を導入する方法としては、従来公知の任意の方法が可能である。例えば、置換または非置換フェニル基を有するモノマーを重合することにより、置換または非置換フェニル基を有する熱可塑性樹脂を得てもよい。また例えば、各種モノマーを重合して主鎖を形成した後、側鎖に置換または非置換フェニル基を導入してもよい。例えば、置換もしくは非置換のフェニル基を有する化合物を側鎖にグラフトさせてもよい。

【0058】フェニル基が置換基で置換されている場合、当該置換基としては、フェニル基の水素を置換し得る従来公知の置換基および置換位置が使用可能である。具体的には置換基は、例えば、アルキル基などである。

【0059】熱可塑性樹脂(B)にニトリル基を導入する方法としては、従来公知の任意の方法が可能である。例えば、ニトリル基を有するモノマーを重合することにより、ニトリル基を有する熱可塑性樹脂を得てもよい。また例えば、各種モノマーを重合して主鎖を形成した後、側鎖にニトリル基を導入してもよい。例えば、ニトリル基を有する化合物を側鎖にグラフトさせてもよい。

【0060】本発明に用いられる熱可塑性樹脂(B)は、好ましくは、不飽和ニトリル化合物から誘導される繰返し単位(ニトリル単位)とスチレン系化合物から誘導される繰返し単位(スチレン系単位)とを含む共重合体(二元もしくは三元以上の多元共重合体)である。

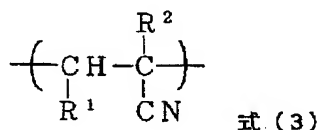
【0061】熱可塑性共重合体(B)は、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位とを主成分として含むことが特に好ましい。不飽和ニトリル単位とスチレン系単位との合計が、熱可塑性共重合体(B)の70重量%以上であることが好ましい。より好ましくは80重量%以上であり、さらに好ましくは90重量%であり、特に好ましくは95重量%以上である。勿論、100重量%としてもよい。

【0062】(ニトリル化合物)上記の好ましい共重合体(B)を構成する不飽和ニトリル化合物の好ましい例を挙げると、アクリロニトリルやメタクリロニトリルのような $\alpha$ -置換不飽和ニトリル、フマロニトリルのような $\alpha$ 、 $\beta$ -二置換オレフィン性不飽和結合を有するニトリル化合物である。

【0063】(スチレン系化合物)上記の好ましい共重合体(B)を構成するスチレン系化合物としては、スチレン、ビニルトルエン、メトキシスチレンまたはクロロスチレン等の非置換または置換スチレン系化合物や、 $\alpha$ -メチルスチレン等の $\alpha$ -置換スチレン系化合物を用いることができる。

【0064】好ましい実施態様では、熱可塑性樹脂

(B) は、式(3)で表される繰り返し単位および式(4)で表される繰り返し単位を有する。熱可塑性樹脂(B)中の総繰り返し単位を基準として、式(3)の繰り返し単位は、好ましくは、20~50重量%であり、\*



【0066】(式(3)において、R<sup>1</sup> および R<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、水素または炭素数1~8のアルキル基を示す。アルキル基の炭素数は、好ましくは1~4であり、より好ましくは、1~2である。)

(式(4)において、R<sup>1</sup> および R<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、水素または炭素数1~8のアルキル基を示し、R<sup>4</sup> は、水素、炭素数1~8のアルキル基、ハロゲン基、水酸基、アルコキシ基、もしくはニトロ基を示す。アルキル基の炭素数は、好ましくは1~4であり、より好ましくは、1~3である。さらに好ましくは、1~2である。式(4)において、アルコキシ基の炭素数は、好ましくは、1~20であり、より好ましくは、1~8であり、さらに好ましくは、1~4である。)

熱可塑性樹脂(B)中の総繰り返し単位を基準として、式(4)の繰り返し単位は、好ましくは、50~80重量%であり、より好ましくは60~80重量%であり、さらに好ましくは70~80重量%である。1つの好ましい実施態様では、式(3)の繰り返し単位と式(4)の繰り返し単位との和は100%である。しかし、必要に応じて、後述する第3の繰り返し単位を用いてもよい。

【0067】第3の繰り返し単位を用いる場合、第3の繰り返し単位は、熱可塑性共重合体(B)の重量を基準として、好ましくは30重量%以下であり、より好ましくは20重量%以下であり、さらに好ましくは15重量%以下であり、特に好ましくは10重量%以下である。第3の繰り返し単位が多すぎる場合には、上記式(1)で表される繰り返し単位と式(2)で表される繰り返し単位との性能が十分に得られにくい。

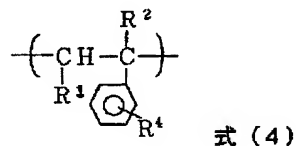
【0068】また、第3の繰り返し単位を用いる場合、第3の繰り返し単位は、熱可塑性共重合体(B)の重量を基準として、好ましくは1重量%以上であり、より好ましくは2重量%以上であり、さらに好ましくは3重量%以上であり、特に好ましくは5重量%以上である。第3の繰り返し単位が少なすぎる場合には、組成物全体として、第3の繰り返し単位による性能が十分に得られにくい。

【0069】なお、第3の繰り返し単位を用いる場合においても、式(3)の繰り返し単位と式(4)の繰り返し単位との比率は、第3の繰り返し単位が存在しない場合と同様の比率とすることが好ましい。

\*より好ましくは20~40重量%であり、さらに好ましくは20~30重量%である。

【0065】

【化8】



【0070】(第3の繰り返し単位)熱可塑性共重合体(B)は、上記ニトリル単位とスチレン系単位以外に、第3の繰り返し単位として、他の共重合性単量体を含含有していてもかまわない。そのような第3の繰り返し単位には、好ましくは、ブチルアクリレート等のアクリル系単量体、エチレンやプロピレン等のオレフィン系単量体が含まれ得る。これら単量体を1種または2種以上を共重合させることにより、得られたフィルムの可撓性を向上させることができる。また、第3の繰り返し単位としては、N-置換マレイミドを用いることもでき、このN-置換マレイミド、特にフェニルマレイミドを共重合成分として用いることにより、当該共重合体の耐熱性を向上させることができる。

【0071】(熱可塑性樹脂(B)の重合方法)熱可塑性共重合体(B)は、これら単量体を直接共重合させることにより得られるが、スチレン系化合物の重合体および不飽和ニトリル化合物の重合体の一方に、他方をグラフト共重合させてもよい。また、ゴム弾性を有するアクリル系重合体にスチレン系化合物および不飽和ニトリル系化合物をグラフト重合させることにより好ましい共重合体を得ることができる。

【0072】特に好ましい熱可塑性共重合体は、不飽和ニトリル成分としてアクリロニトリルを含含有し、スチレン系成分としてスチレンを含含有する共重合体である。これら共重合体はAS樹脂やAAS樹脂として知られている。

【0073】熱可塑性共重合体(B)において、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位の比率は、好ましくは、前者が20~50重量%であり、後者が50~80重量%である。より好ましくは、前者が20~40重量%であり、後者が60~80重量%である。特に、前者が20~30重量%で、後者が70~80重量%の場合は更に好ましい結果を与える。スチレン系化合物やニトリル系化合物の成分が多すぎる場合には、(A)の熱可塑性樹脂との相溶性が乏しくなり、得られるフィルムの透明性が低下しヘーズが大きくなり好ましくない。

【0074】熱可塑性共重合体(B)は、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位とを主成分として含むことが特に好ましい。不飽和ニトリル単位とスチレン系単位との合計が、熱可塑性共重合体(B)の70重量%以上であることが好ましい。より好ましくは80重量%以上であ

り、さらに好ましくは90重量%であり、特に好ましくは95重量%以上である。勿論、100重量%としてもよい。

【0075】熱可塑性共重合体(B)が、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位とを主成分(好ましくは、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位との合計が、熱可塑性共重合体(B)の70重量%以上)として含む実施態様が特に好ましい。

【0076】熱可塑性共重合体(B)は、 $1 \times 10^3$  以上の重量平均分子量を有することが好ましい。より好ましくは、 $1 \times 10^4$  以上である。

【0077】熱可塑性共重合体(B)は、 $1 \times 10^7$  以下の重量平均分子量を有することが好ましい。より好ましくは、 $5 \times 10^5$  以下である。

【0078】(熱可塑性樹脂(A)と(B)との比)本発明の延伸フィルムを得るために用いる熱可塑性樹脂(A)と熱可塑性樹脂(B)との比率は、熱可塑性樹脂(A)10~90重量%に対して、熱可塑性樹脂(B)10~90重量%の割合で配合することが好ましい。熱可塑性樹脂(A)40~85重量%に対して、熱可塑性樹脂(B)15~60重量%の割合で配合することがより好ましい。熱可塑性樹脂(A)60~80重量%に対して、熱可塑性樹脂(B)20~40重量%の割合で配合することがさらに好ましく、熱可塑性樹脂(A)65~75重量%に対して、熱可塑性樹脂(B)25~35重量%の割合は特に好ましい。

【0079】熱可塑性樹脂(B)が好ましい範囲をはずれると、延伸フィルムにした場合、平面方向または厚み方向の位相差が大きくなるおそれがある。また、得られるフィルムの透明性が低下しやすい。

【0080】両樹脂(A)および(B)を上記割合で配合することにより、フィルムの平面方向および厚み方向の両方において位相差が極めて小さい延伸フィルムとすることができる。

【0081】好ましい実施態様において、熱可塑性樹脂(A)と熱可塑性樹脂(B)との和は100重量%である。

【0082】特に好ましい混合比は熱可塑性樹脂(A)および(B)の種類にも依存する。一般的には、使用する熱可塑性樹脂BおよびAに含まれるフェニル基モル数Pに対する熱可塑性樹脂AおよびBに含まれるイミド基モル数Iの比(I/P比)が1.3以上であることが好ましく、1.4以上がより好ましく、さらに好ましくは1.5以上である。また、2.9以下であることが好ましく、2.6以下であることがより好ましく、2.4以下がさらに好ましい。1つの実施態様では、I/P比を1.7~2.9とすることが好ましい。I/P比を1.8~2.6とすることがより好ましい。

【0083】別の実施態様では、I/P比を1.3~2.0とすることが好ましく、I/P比を1.5~1.50

9とすることがより好ましい。

【0084】N-メチルマレイミドとイソブテンの交互重合体を熱可塑性樹脂(A)として選択し、アクリロニトリルとスチレンの共重合体を熱可塑性樹脂(B)として選択した場合の熱可塑性樹脂(A):熱可塑性樹脂(B)の重量比は60:40~80:20が好ましく、65:35~75:25がより好ましい。熱可塑性樹脂(B)中のアクリロニトリル成分の量は20~30重量%が好ましく、25~29重量%がより好ましい。熱可塑性樹脂(B)中のスチレン系成分の量は80~70重量%が好ましく、75~71重量%がより好ましい。

【0085】上述したような好ましい組成を適宜選択することにより、実質的に複屈折を示さない延伸フィルムを得ることができる。例えば、好ましい実施態様では、フィルムの平面方向の位相差を10nm以下に制御することができ、さらに好ましい実施態様では、6nm以下に制御することができ、また例えば、フィルム厚み方向の位相差を50nm以下に制御することができ、より好ましい実施態様では、20nm以下に制御することができる。特に好ましい実施態様では、10nm以下に制御することができる。フィルムの平面方向の位相差が10nm以下、かつフィルム厚み方向の位相差が50nm以下である場合、一般的には、実質的に複屈折がないと評価することができる。

【0086】また上述した好ましい組成を適宜選択すれば、上記複屈折性能と同時に、光線透過率が高く、かつ、ヘーズが低い延伸フィルムを得ることができる。具体的には、例えば、好ましい実施態様では、光線透過率が85%以上のフィルムが容易に得られ、より好ましい実施態様では、88%以上のフィルムが得られ得る。また、好ましい実施態様では、ヘーズが2%以下に制御され得、より好ましい実施態様では、1%以下に制御され得る。特に好ましい実施態様では、0.5%以下に制御され得る。光線透過率が85%以上、かつヘーズが2%以下であるフィルムであれば、各種光学用途の高性能フィルムとして使用することができる。

【0087】(組成物の製造)本発明に用いる樹脂組成物を得る方法としては、熱可塑性樹脂(A)と熱可塑性樹脂(B)とを混合してフィルム成形機に投入し得る状態とすることができる限り、公知の任意の方法が採用され得る。

【0088】例えば、熱可塑性樹脂(A)と熱可塑性樹脂(B)とを単に混合することにより樹脂組成物を得る方法や、両樹脂を熱溶融混練して樹脂組成物を得る方法が挙げられる。

【0089】これらの樹脂組成物は、必要に応じて、可塑剤、熱安定剤、加工性改良剤、紫外線吸収剤やフィラー等の公知の添加剤やその他の樹脂を含有してもよい。なお、本明細書中では、このような、熱可塑性樹脂(A)および熱可塑性樹脂(B)以外の樹脂を、「第3



の樹脂」ともいう。

【0090】未延伸のフィルムの機械的特性を向上させるために可塑剤や可撓性を有する高分子などを樹脂組成物に添加してもよい。しかしこれらの材料を用いると、ガラス転移温度が低下して耐熱性が損なわれる虞があり、あるいは透明性が損なわれる等の虞がある。このため、これらの可塑剤または可撓性高分子を用いる場合、その添加量は、フィルムの性能を妨げない量とするべきである。好ましくは、樹脂組成物中の20重量%以下である。より好ましくは、10重量%以下であり、さらに好ましくは5重量%以下である。

【0091】熱可塑性樹脂(A)のイミド含有率が高い場合、具体的には、例えば、熱可塑性樹脂(A)のイミド含有率が40モル%以上であるような場合には、得られるフィルムは硬く脆くなる傾向にあるため、少量の可塑剤を加えれば、フィルムの応力白化や裂けを防止することができるので有効である。このような可塑剤としては、従来公知の可塑剤が使用可能である。例えば、アジピン酸ジ-n-デシルなどの脂肪族二塩基酸系可塑剤やリン酸トリブチルなどのリン酸エステル系可塑剤などが例示され得る。

【0092】上記第3の樹脂とは、上記熱可塑性樹脂(A)および(B)以外の樹脂をいう。第3の樹脂は熱可塑性樹脂であってもよく、熱硬化性樹脂であってもよい。好ましくは熱可塑性樹脂である。また、第3の樹脂は単独の樹脂であってもよく、または複数種類の樹脂のブレンドであってもよい。第3の樹脂を用いる場合の使用量は、樹脂組成物中に使用される樹脂の合計、すなわち、熱可塑性樹脂(A)および(B)ならびに第3の樹脂の合計量のうちの30重量%以下であることが好ましく、より好ましくは20重量%以下であり、さらに好ましくは10重量%以下である。また、使用される樹脂の合計量のうちの1重量%以上であることが好ましく、より好ましくは2重量%以上であり、さらに好ましくは3重量%以上である。

【0093】第3の樹脂が多すぎる場合には、熱可塑性樹脂(A)および(B)の性能が充分に発揮されにくい。また、熱可塑性樹脂(A)および(B)との相溶性が低い樹脂を用いると、得られるフィルムの光学的性能が低下しやすい。第3の樹脂が少なすぎる場合には、第3の樹脂の添加効果が得られにくい。

【0094】なお、第3の樹脂を用いる場合であっても、熱可塑性樹脂(A)と、熱可塑性樹脂(B)との配合比は、第3の樹脂を用いない場合と同様に、前述した比率であることが好ましい。

【0095】(フィルムの製造) フィルムを成形する方法としては、従来公知の任意の方法が可能である。例えば、溶液流延法および溶融押出法等などが挙げられる。そのいずれをも採用することができる。

【0096】好ましい実施態様においては、フィルム化

の前に、用いる樹脂組成物を予備乾燥しておく。予備乾燥により、フィルムの発泡などの欠陥を防ぐことができるので非常に有用である。

【0097】(延伸) 本発明の一軸延伸フィルムは、上記の樹脂組成物を未延伸状態の原料フィルムに成形し、さらに一軸延伸を行うことにより得られる。本明細書中では、説明の便宜上、上記樹脂組成物をフィルム状に成形した後、延伸工程を施す前のフィルムを「原料フィルム」と呼ぶ。

【0098】延伸を行うことにより、機械的特性が向上する。従来のフィルムでは延伸処理を行った場合に位相差の発生を避ける事が困難であった。しかし、本発明のフィルムは、延伸処理を施しても位相差が実質的に発生しないという利点を有する。

【0099】フィルムの延伸は、原料フィルムを成形した後、すぐに連続的に行ってもよい。ここで、上記「原料フィルム」との状態が瞬間的にしか存在しない場合があり得る。瞬間的にしか存在しない場合には、その瞬間的な、フィルムが形成された後延伸されるまでの状態を原料フィルムという。また、原料フィルムとは、その後延伸されるのに十分な程度にフィルム状になっていればよく、完全なフィルムの状態である必要はなく、もちろん、完成したフィルムとしての性能を有さなくてもよい。

【0100】また、必要に応じて、原料フィルムを成形した後、一旦フィルムを保管もしくは移動し、その後フィルムの延伸工程を行ってもよい。

【0101】フィルムを延伸する方法としては、従来公知の任意の延伸方法が採用され得る。具体的には、例えば、テンターを用いた横延伸、ロールを用いた縦延伸、自由端一軸延伸、およびこれらを逐次組み合わせた逐次二軸延伸方法などがある。また、縦と横を同時に延伸する同時二軸延伸方法も採用可能である。ロール縦延伸を行った後、テンターによる横延伸を行う方法を採用しても良い。

【0102】本発明においては特に、ロールを用いた縦延伸が好ましい。

【0103】本発明の一軸延伸フィルムは、一軸延伸フィルム状態で最終製品とすることができる。勿論、必要に応じてさらに延伸工程を組合せて行って2軸延伸フィルムとしてもよい。ただし、本発明の一軸延伸フィルムは、二軸延伸を行わなくても良好な性能を発揮するので、一軸延伸フィルムとして使用することが、製造プロセスの簡略化、低コスト化などの点で好ましい。具体的には、テンターを用いた横延伸機や縦と横を同時に延伸する同時二軸延伸機のような高価なそして大がかりな装置を用いることなく、ロール縦延伸機のみで、フィルムが粘着ロールを通過する時やスリットする時、巻き取る時あるいは横延伸機のクリップに挟む時等のフィルムの製造時に、あるいは他の材料とのラミネートなどの後加

工において、フィルムの裂け、あるいは割れを起こしにくいという利点がある。

【0104】（ネックイン率）本発明において、好ましいフィルムの一軸延伸時のネックイン率（%）は  $(1 - (1 / (\text{延伸倍率の3乗根}))) \times 100$  以下である。好ましくは、 $(1 - (1 / (\text{延伸倍率の3.5乗根}))) \times 100$  以下である。より好ましくは、 $(1 - (1 / (\text{延伸倍率の4乗根}))) \times 100$  以下である。さらに好ましくは、 $(1 - (1 / (\text{延伸倍率の5乗根}))) \times 100$  以下である。特に好ましくは、 $(1 - (1 / (\text{延伸倍率の6乗根}))) \times 100$  以下である。

【0105】例えば、延伸倍率が2倍である場合、上記延伸倍率の3乗根に基づくネックイン率の好ましい上限は、以下の通り計算される。

$$(1 - 1 / (\text{延伸倍率})^{1/3}) \times 100 = (1 - 1 / (2^{1/3})) \times 100 = 20.6\%$$

ネックイン率が高すぎる場合、フィルムの延伸方向と直交する方向において機械的強度が低下しやすい。このため、十分なハンドリング性が得られにくい。すなわち、フィルムが粘着ロールを通過、剥離する時やスリットする時、巻き取る時あるいは横延伸機のクリップに挟む時などのフィルムの製造時、あるいは他の材料とのラミネートなどの後加工時などにフィルムが割れやすく、また裂けやすいなどの問題が発生する。

【0106】他方、ネックイン率が高すぎると延伸中にフィルムに皺が入りやすいなどの弊害が発生しやすい。

【0107】ネックイン率とは延伸によるフィルム延伸方向と直交する方向の長さ変化率である。すなわち、縦延伸の場合であれば幅方向の長さ変化率である。ネックイン率は、次式で計算される。

【0108】

$$\text{ネックイン率}(\%) = (W0 - W) / W0 \times 100.$$

【0109】ここで、W0は延伸軸と直交する方向（幅方向）の延伸前のフィルム幅である。Wは延伸後のフィルム幅である。

【0110】ネックイン率を制御する方法としては、上記好ましいネックイン率が得られる限り、任意の方法が採用され得る。例えば、低速で回転するロールと高速で回転するロール間の共通接線間距離（延伸ロール間距離）を短くする方法が挙げられる。より具体的には例えば、ロール間距離は、好ましくは、150mm以下であり、より好ましくは、100mm以下であり、さらに好ましくは70mm以下であり、特に好ましくは50mm以下である。ロール間距離が長すぎると、ネックイン率の制御が困難になりやすい。ロール間距離は、好ましくは、10mm以上であり、より好ましくは、20mm以上である。ロール間距離が短すぎる場合には、フィルムが不均一に延伸されやすい。好ましい実施態様において、ロール間距離は、20mm～70mmである。

【0111】ネックイン率を制御する方法としてはま

た、フィルムを走行方向とこれに直交する方向に引っ張るクロスガイダーを使用する方法などが挙げられる。

【0112】テンター横延伸により得られるロール状フィルムに於いては実質的にネックインは起こらない。しかし、横延伸のみではフィルムの走行方向の機械的強度が不十分となりやすく、フィルムの製造において割れや裂けが非常に発生しやすい。また、後加工、例えば他のフィルムとラミネートする際などにも割れや裂けが非常に発生しやすい。

【0113】フィルムの延伸温度および延伸倍率は、得られたフィルムの機械的強度を指標として適宜調整することができる。延伸温度の範囲は、DSC法によって求めたフィルムのガラス転移温度をTgとしたときに、好ましくは、Tg-30℃～Tg+30℃の範囲である。より好ましくは、Tg-20℃～Tg+20℃である。さらに好ましくは、Tg以上Tg+20℃以下の範囲である。延伸温度が高すぎる場合、得られたフィルムの伸び率や引裂伝播強度、耐揉疲労の改善が不十分になりやすく、また、フィルムがロールに粘着するトラブルが起こりやすい。逆に、延伸温度が低すぎる場合、延伸フィルムのヘーズが大きくなりやすく、また、極端な場合には、フィルムが裂けやすい、割れやすいなどの工程上の問題を引き起こしやすい。

【0114】好ましい延伸倍率は、延伸温度にも依存するが、1.1倍から3倍の範囲で選択される。より好ましくは1.3倍～2.5倍である。さらに好ましくは1.5倍～2.3倍である。

【0115】該熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）とを前述した好ましい組成範囲に調整した適切な延伸条件を選択することにより、実質的に複屈折を生じさせることなく、また光線透過率の低下またはヘーズの増大を実質的に伴わずに、フィルムを延伸することが容易にできる。好ましくは1.3倍以上、より好ましくは1.5倍以上延伸することにより、フィルムの伸び率、引裂伝播強度、および耐揉疲労などが大幅に改善され、複屈折が実質的にゼロであり、光線透過率が85%以上、ヘーズが1%以下のフィルムを得ることができる。延伸倍率が大きすぎる場合、ネックイン率が大きくなり過ぎやすい。このため、延伸方向と直交する方向（縦延伸の場合であれば幅方向）の機械的強度が低くなり過ぎやすい。

【0116】本発明のフィルムの厚みは、好ましくは10μmから300μmであり、より好ましくは20μmから150μmであり、さらに好ましくは30μmから100μmである。

【0117】本発明のフィルムのガラス転移温度は80℃以上が好ましく、100℃以上がより好ましく、130℃以上がさらに好ましい。ガラス転移温度の上限は特にないが、250℃以下が好ましく、200℃以下がより好ましい。

【0118】本発明のフィルムの光線透過率は、85%以上が好ましく、より好ましくは、88%以上である。また、フィルムのヘーズは2%以下が好ましく、より好ましくは1%以下である。さらに好ましくは、0.5%以下である。

【0119】本発明のフィルムは、そのまま最終製品として各種用途に使用することができる。あるいは各種加工を行って、種々の用途に使用できる。特に優れた透明性、低複屈折性などを利用して光学的等方フィルム、偏光子保護フィルムや透明導電フィルムなど液晶表示装置 10 周辺等の公知の光学的用途に好適に用いることができる。

【0120】本発明の延伸フィルムは、必要によりフィルムの片面あるいは両面に表面処理を行うことができる。表面処理方法としては、例えば、コロナ処理、プラズマ処理、紫外線照射、およびアルカリ処理などが挙げられる。特に、フィルム表面にコーティング加工等の表面加工が施される場合や、粘着剤により別のフィルムがラミネートされる場合には、相互の密着性を上げるための手段として、フィルムの表面処理を行うことが好まし 20 い。コロナ処理が特に好適な方法である。好ましい表面処理の程度は、50 dyn/cm以上である。上限は特に定められないが、表面処理のための設備などの点から、80 dyn/cm以下であることが好ましい。

【0121】また、本発明の延伸フィルムの表面には、必要に応じハードコート層などのコーティング層を形成することができる。また、本発明のフィルムは、コーティング層を介して、または、介さずに、スパッタリング法等によりインジウムスズ酸化物系等の透明導電層を形成することができ、プラスチック液晶表示装置の電極基 30 板やタッチパネルの電極基板として用いることもできる。

【0122】(偏光子保護フィルム) 本発明の延伸フィルムは、偏光子に貼合せて使用することができる。すなわち、偏光子保護フィルムとして使用することができる。ここで、偏光子としては、従来公知の任意の偏光子が使用可能である。具体的には、例えば、延伸されたポリビニルアルコールにヨウ素を含有させて偏光子を得ることができる。このような偏光子に本発明の延伸フィルムを偏光子保護フィルムとして貼合して偏光板とすることができる。偏光子保護フィルムは、偏光子の片面または両面に積層される。一般的には、偏光子の両側に偏光子保護フィルムが積層される。

【0123】(本発明の製造方法) 本発明の製造方法は、延伸フィルムの製造方法であって、(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなる原料フィルムをロール縦一軸延伸する工程を包含する。ここで、得られる延伸フィルムのネックイン率(%)が 50

(1-1/延伸倍率の3乗根)×100以下となるように、延伸条件が調節される。あるいは、該ロール縦一軸延伸を行う際のロール間距離が10mm~150mmに調節される。

【0124】本発明の製造方法に使用する配合材料については、本発明のフィルムのための配合材料として上述した通りである。

【0125】原料フィルムは、従来公知の任意の方法で成形され得る。例えば、溶液流延法および熔融押出法等などが挙げられる。なお、本発明の方法においては、原料フィルムの製造後、一旦フィルムを保管して、その後別工程として延伸を行ってもよい。また、原料フィルムの製造の後に続けてフィルムの延伸を行ってもよい。ここで、上記「原料フィルム」との状態が瞬間的にしか存在しない場合があり得る。瞬間的にしか存在しない場合には、その瞬間的な、フィルムが形成された後延伸されるまでの状態を原料フィルムという。また、原料フィルムとは、その後延伸されるのに充分な程度にフィルム状になっていればよく、完全なフィルムの状態である必要はなく、もちろん、完成したフィルムとしての性能を有さなくてもよい。

【0126】ロール縦一軸延伸の工程は、従来公知のロール設備を用いて行うことができる。ここで、延伸条件を適宜調節することにより、フィルムのネックイン率が調節される。延伸条件としては、本発明のフィルムの延伸方法について上述した延伸条件と同様の延伸条件が使用可能である。好ましくは、ロール間距離を調節することにより、フィルムのネックイン率が調節される。ロール間距離は、好ましくは、150mm以下であり、より好ましくは、100mm以下であり、さらに好ましくは70mm以下であり、特に好ましくは50mm以下である。ロール間距離が長すぎると、ネックイン率の制御が困難になりやすい。ロール間距離は、好ましくは、10mm以上であり、より好ましくは、20mm以上である。ロール間距離が短すぎる場合には、ロールを配置する設備が複雑な構造になりコストが上昇しやすい。好ましい実施態様において、ロール間距離は、20mm~70mmである。

【0127】ネックイン率を制御する方法としてはまた、フィルムを走行方向とこれに直交する方向に引っ張るクロスガイダーを使用する方法などが挙げられる。

【0128】

【実施例】(物性測定方法) 以下に本発明の実施例を説明する。実施例の具体的な内容を説明する前に、まず、実施例および比較例に示される各物性値の測定方法を以下に示す。

【0129】<引裂伝播強度> 島津製作所製のオートグラフを使用してJIS K7128(トラウザー法)に従い測定した。尚、測定は平均厚みが50±5μmのフィルムを使用し、引張速度が200mm/分の条件で



行った。また、結果のMD値は、MD方向に引き裂いた時の数値を示す。

【0130】＜耐揉疲労＞ 東洋精機製作所社製、MIT耐揉疲労試験機（FOLDINGENDURANCE TESTER）D型を使用し、JIS C5016に準拠して測定した。尚、測定は、幅15mm、長さ200mm、平均厚み $50 \pm 5 \mu\text{m}$ の形状のサンプルを使用し、135°折り曲げ（ $R=0.38$ ）の条件で行った。また結果のMD値とは、MD方向に折り曲げたときの数値を示す。

【0131】＜ガラス転移温度＞ JIS K7121に準拠し測定した。

【0132】＜光線透過率＞ JIS K7105-1981の5.5記載の方法により550nmの光を用いて測定した。

【0133】＜ヘーズ＞ JIS K7105-1981の6.4記載の方法により測定した。

【0134】＜平面方向の位相差＞ 顕微偏光分光光度計（オーク製作所：TFM-120AFT）を用い、測定波長514.5nmで測定した。

【0135】＜厚み方向の位相差＞ 顕微偏光分光光度計（オーク製作所：TFM-120AFT）を用い、514.5nmの測定波長で位相差の角度依存性を測定し、 $n_x$ 、 $n_y$ 、 $n_z$ を求めた。別途フィルムの厚みを測定し、下式を用いて厚み方向の位相差を計算した。

【0136】厚み方向の位相差 =  $| (n_x + n_y) / 2 - n_z | \times d$

以下、実施例に従って本発明を具体的に説明する。

【0137】（製造例1）イソブテンとN-メチルマレイミドから成る交互共重合体（N-メチルマレイミド含量50モル%、ガラス転移温度157℃）65重量部と、アクリロニトリルの含量が27重量%であるアクリロニトリル・スチレン共重合体35重量部を、塩化メチレン溶液に固形分濃度15重量%になるように溶解し、支持体上に連続的に流延して乾燥し、支持体からフィルムを剥離したした後、さらに乾燥して長尺フィルムを得た。

【0138】（実施例1）製造例1のフィルムを、引き続いてロール縦一軸延伸機にて145℃、延伸ロール間距離25mmで2.0倍に延伸した。このフィルムのネックイン率は9.3%、ヘーズは0.4%、フィルムの平面方向の位相差は5nm、厚み方向の位相差は6nmであった。また、ガラス転移温度は138℃、耐揉疲労はMD方向が50回、TD方向が189回、引裂伝播強度は、MD方向が111gf/mm、TD方向が193gf/mmであった。このフィルムをレザーカッターを用いて、ライン速度3m/分でスリットした。その結果、フィルムに割れは発生しなかった。また、フィルムを0.1kg/cmの張力下、ライン速度3m/分で粘着ロールを通過させた。その結果、フィルムに割れは発

生しなかった。

【0139】（比較例1）製造例1のフィルムの延伸を行わずに、そのフィルムの性能を評価した。フィルムのフィルム平面方向の位相差は4nm、厚み方向の位相差は4nm、光線透過率は92%、ヘーズは0.3%であった。また、耐揉疲労はMD方向が4回、TD方向が5回、引裂伝播強度は、MD方向が75gf/mm、TD方向が73gf/mmであった。

【0140】製造例1のフィルムをカッターでスリットしたところ、スリットする際にフィルムの割れが多発した。

【0141】（製造例2）製造例1と同様の樹脂を前もって押出機にてペレットにしたものを100℃、5時間乾燥した後、40mm単軸押出機と400mm幅のTダイを用いて270℃で押出し、フィルムを得た。

【0142】（実施例2）製造例2のフィルムを、引き続いてロール縦一軸延伸機にて145℃、延伸ロール間距離40mmで2.0倍に延伸した。このフィルムのネックイン率は16.3%、ヘーズは0.4%、フィルムの平面方向の位相差は6nm、厚み方向の位相差は8nmであった。また、ガラス転移温度は138℃、耐揉疲労はMD方向が61回、TD方向が180回、引裂伝播強度は、MD方向が131gf/mm、TD方向が189gf/mmであった。このフィルムをレザーカッターを用いて、ライン速度3m/分でスリットした。その結果、フィルムに割れは発生しなかった。また、フィルムを0.1kg/cmの張力下、ライン速度3m/分で粘着ロールを通過させた。その結果、フィルムに割れは発生しなかった。

【0143】（比較例2）製造例2のフィルムを延伸せずに、そのフィルムの性能評価を行った。フィルム平面方向の位相差は5nm、厚み方向の位相差は4nm、光線透過率は91%、ヘーズは0.3%であった。また、耐揉疲労はMD方向が5回、TD方向が7回、引裂伝播強度は、MD方向が80gf/mm、TD方向が74gf/mmであった。

【0144】製造例2のフィルムをカッターでスリットしたところ、スリットする際にフィルムの割れが多発した。

【0145】（比較例3）製造例2のフィルムを製造した後、引き続いてロール縦一軸延伸機にて145℃、延伸ロール間距離200mmで2.0倍に延伸した。このフィルムのネックイン率は28.5%、ヘーズは0.4%、フィルムの平面方向の位相差は6nm、厚み方向の位相差は8nmであり、耐揉疲労はMD方向が3回、TD方向が224回、引裂伝播強度は、MD方向が32gf/mm、TD方向が280gf/mmであった。しかし、このフィルムをカッターでスリットする際にフィルムの割れが多発した。

【0146】（製造例3）製造例2において、イソブテ

ンとN-メチルマレイミドから成る交互共重合体(N-メチルマレイミド含量50モル%、ガラス転移温度157℃)を70重量部と、アクリロニトリルの含量が26重量%であるアクリロニトリル・スチレン共重合体を30重量部(I/P比=2.46)にした以外は同じ方法でフィルムを得た。

【0147】(実施例3)製造例3と同様の方法で作成したフィルムを用いて実施例2と同じ方法で延伸フィルムを得た。このフィルムをレーザーカッターを用いて、ライン速度3m/分でスリットした。その結果、フィルムに割れは発生しなかった。また、フィルムを0.1kg/cmの張力下、ライン速度3m/分で粘着ロールを通過させた。その結果、フィルムに割れは発生しなかった。

\*

\*【0148】(比較例4)製造例3のフィルムをカッターでスリットしたところ、スリットする際にフィルムの割れが多発した。

【0149】(比較例5)イソブテンとN-メチルマレイミドから成る交互共重合体(N-メチルマレイミド含量50モル%、ガラス転移温度157℃)のみを用いて、延伸温度を160℃に変えた以外は実施例2と同じ方法で延伸フィルムを得た。このフィルムの平面方向の位相差は10nm、厚み方向の位相差は540nmであった。

【0150】以下の表に、上記各実施例および比較例を整理して示す。

【0151】

【表1】

	実施例			比較例				
	1	2	3	1	2	3	4	5
原料フィルム	製造例1	製造例2	製造例3	製造例1	製造例2	製造例2	製造例3	
延伸方法	ロール縦一軸	ロール縦一軸	ロール縦一軸	無延伸	無延伸	ロール縦一軸	無延伸	ロール縦一軸
ロール間距離	25mm	40mm	40mm	—	—	200mm	—	40mm
ネックイン率	9.3%	15.3%	16.0%	—	—	28.5%	—	16.9%
延伸倍率	2.0倍	2.0倍	2.0倍	—	—	2.0倍	—	2.0倍
ヘーズ	0.4%	0.4%		0.3%	0.3%	0.4%		
光線透過率				92%	91%			
平面方向位相差	5nm	5nm		4nm	5nm	6nm		10nm
厚み方向位相差	5nm	8nm		4nm	4nm	8nm		540nm
耐揉疲労MD	50回	61回		4回	5回	3回		
耐揉疲労TD	189回	180回		5回	7回	224回		
引裂伝播強度MD	111gf/mm	131gf/mm		75gf/mm	80gf/mm	32gf/mm		
引裂伝播強度TD	193gf/mm	189gf/mm		73gf/mm	74gf/mm	280gf/mm		
スリット時割れ	なし	なし	なし	割れが多発	割れが多発	割れが多発	割れが多発	—
ロール通過時割れ	なし	なし	なし	—	—	—	—	—

MD：フィルムの長手方向

TD：フィルムの幅方向

【0152】

【発明の効果】本発明によれば、ネックイン率を制御しながら特定の熱可塑性樹脂からなるフィルムを縦一軸延伸することにより、ハンドリング性および光学特性に優れた光学フィルムが提供される。

【0153】具体的には、本発明によれば、比較的安価なロール縦一軸延伸機などを用いて、ネックイン率を制御しながら特定の組成を有する樹脂組成物からなるフィルム

※ルムを一軸延伸することにより、フィルムの伸び率や耐揉疲労、引裂伝播強度等の機械的強度が改善できる。またフィルムの製造時や後加工時等のハンドリング性が大幅に改善される。さらに、フィルムが割れる、裂けるなどの問題の発生が大幅に減少する。またさらに、複屈折がほとんど発生せず位相差が実質的に発生しないフィルムが得られる。

## フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テーマコード (参考)

C 0 8 L 101/02

C 0 8 L 101/02

G 0 2 B 5/30

G 0 2 B 5/30

// B 2 9 K 101:12

B 2 9 K 101:12

B 2 9 L 7:00

B 2 9 L 7:00

F ターム (参考) 2H049 BB19 BB22 BB28 BB34 BB37

BB39

4F071 AA04 AA21 AA21X AA22

AA22X AA34 AA34X AA39

AA39X AH12 AH16 BA01

BA02 BB02 BB06 BB07 BC01

4F210 AG01 AH73 QA03 QC01 QC02

QG01 QG18

4J002 BB161 BB171 BC042 BC082

BC092 BC112 BC122 BG122

BG132 BH021